

PATENT APPLICATION

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the Application of:

OKONOGI, et al.

Group Art Unit: Unknown

Application No.: 10/721,784

Examiner: Unknown

Filed: November 26, 2003

Attorney Dkt. No.: 106145-00074

For: SEAL CONSTRUCTION FOR FUEL CELL

CLAIM FOR PRIORITY

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Date: March 24, 2004

Sir:

The benefit of the filing dates of the following prior foreign application(s) in the following foreign country is hereby requested for the above-identified patent application and the priority provided in 35 U.S.C. §119 is hereby claimed:

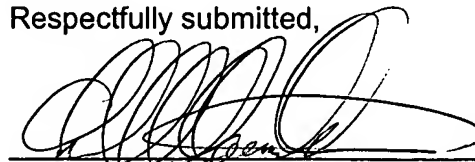
Japanese Patent Application Nos. 2002-343784; 2002-343785; 2002-343786 filed November 27, 2002 and 2003-368809 filed October 29, 2003

In support of this claim, certified copy of said original foreign application is filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the requirements of 35 U.S.C. §119 have been fulfilled and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of these/this document.

Please charge any fee deficiency or credit any overpayment with respect to this paper to Deposit Account No. 01-2300.

Respectfully submitted,



Charles M. Marmelstein  
Registration No. 25,895

Customer No. 004372  
ARENT FOX KINTNER PLOTKIN & KAHN, PLLC  
1050 Connecticut Avenue, N.W.,  
Suite 400  
Washington, D.C. 20036-5339  
Tel: (202) 857-6000  
Fax: (202) 638-4810  
CMM/jch



日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 2 年 1 1 月 2 7 日  
Date of Application:

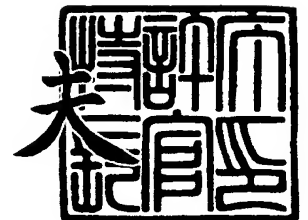
出 願 番 号                      特 願 2 0 0 2 - 3 4 3 7 8 6  
Application Number:  
[ST. 10/C] :                      [ J P 2 0 0 2 - 3 4 3 7 8 6 ]

出      願      人                      本 田 技 研 工 業 株 式 有 限 公 司  
Applicant(s):

2 0 0 3 年    9 月 1 7 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号    出証特 2 0 0 3 - 3 0 7 6 4 4 8

【書類名】 特許願

【整理番号】 H102240401

【提出日】 平成14年11月27日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B32B 15/08  
H01M 8/02  
H01M 8/10

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号  
株式会社本田技術研究所内

【氏名】 小此木 泰介

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号  
株式会社本田技術研究所内

【氏名】 田中 広行

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号  
株式会社本田技術研究所内

【氏名】 西山 忠志

【特許出願人】

【識別番号】 000005326

【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100064414

【弁理士】

【氏名又は名称】 磯野 道造

【電話番号】 03-5211-2488

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 015392

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9713945

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 シール付き燃料電池用セパレータ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 セパレータの少なくとも一方の端部の表裏にシールを有するシール付き燃料電池用セパレータであって、

前記シールは、前記セパレータの表裏で種類の異なるゴム材からなることを特徴とするシール付き燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】 前記シールは、前記セパレータの空気通路側の面には酸素に耐久性のある種類のゴム材、前記セパレータの冷媒通路側の面には冷媒に耐久性のあるゴム材からなることを特徴とする請求項 1 に記載のシール付き燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】 前記シールは、前記セパレータの水素ガス通路側の面には水素に耐久性のある種類のゴム材、前記セパレータの冷媒通路側の面には冷媒に耐久性のあるゴム材からなることを特徴とする請求項 1 に記載のシール付き燃料電池用セパレータ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、シール付き燃料電池用セパレータに関し、詳しくは、各部位の環境に適するゴム材を用いたシールを有するシール付き燃料電池用セパレータに関するものである。

【0002】

【従来の技術】

近年、電気自動車の動力源等として固体高分子型の燃料電池が注目されている。固体高分子型の燃料電池（PEFC）は、常温でも発電することが可能であり、様々な用途に実用化されつつある。

【0003】

一般に燃料電池システムは、固体高分子電解質膜を挟んで一方側にカソード極を区画し、他方側にアノード極を区画して構成されており、カソード極に供給さ

れる空気中の酸素と、アノード極に供給される水素との電気化学反応によって発生した電力で外部負荷を駆動するシステムである。

#### 【0004】

このような燃料電池システムには、図3(a)に示すような燃料電池スタック100が設けられている。燃料電池スタック100は、1つの膜を挟んで発電する1つの単セルを、たとえば、電極面が鉛直になるように水平方向に何段か繰り返し積層し、ボルト等で締め付けて一体化したものである。

単セルは、図3(b)に示すように高分子電解質膜M、電極触媒層C、C、ガス拡散層D、D、セパレータSA、SH等により構成される。なお、高分子電解質膜Mの一面側に電極触媒層Cとガス拡散層D、他面側に電極触媒層Cとガス拡散層Dを設けた構造体を膜電極接合体MEAということもある。また、図3(b)の符号RSは、ゴムシール材である。

#### 【0005】

これらの構成部材のうちセパレータSA、SHは、単セルを複数枚重ねて所要の電圧を得る各セル間の繋ぎ（積層化機能）を持たせるために用いられるものであるが、その他、以下の機能も要求される。

- (1) 燃料電池スタック100内で水素や空気をセルに供給する供給通路を確保する機能。
- (2) 燃料電池スタック100を冷却するための冷却液の供給通路を確保する機能。
- (3) 電流（電子）を集めて取り出す機能。

#### 【0006】

このようなセパレータSA、SHは、燃料電池スタックとして形成された際に、前記したように、積層された状態となるが（図3参照）、一構成単位である単セルにおけるセパレータSAとセパレータSHの間では、水素や空気や水が系外に漏洩しないための気密性や液密性が要求される。

#### 【0007】

そのため、従来から、セパレータSAとセパレータSHの表裏両面に、単一種類のゴム材からなるシール（フッ素系、EPDM系）を一体成形することにより

、これらの気密性・液密性を確保していた（たとえば、特許文献1）。

【0008】

【特許文献1】 特開平11-129396号公報（第2頁、第1図）

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、単一種類のゴム材からなるシールでは、以下の問題があった。

まず、セパレータの表裏面は、ガス（水素、酸素）流路に面する面であったり、あるいは冷媒通路に面する面であったりとそれぞれ環境が異なるため、求める耐久性が異なるにもかかわらず、同一の環境性しか提供していないという問題があった。

また、シールの荷重特性をそれぞれの環境に適するように変えたい場合であっても、形状の変更によるしか方法がない、という問題があった。

さらに、単一種類のゴム材では、高い絶縁性等特別な機能を部分的に付与させることもできないという問題があった。

【0010】

したがって、本発明は、それぞれの部位における環境に適するようなシールを有するシール付き燃料電池用セパレータを提供することを課題とする。

【0011】

【課題を解決するための手段】

本発明は、前記課題を解決すべく構成されるものであり、請求項1に記載の発明は、セパレータの少なくとも一方の端部の表裏にシールを有するシール付き燃料電池用セパレータであって、前記シールは、前記セパレータの表裏で種類の異なるゴム材からなることを特徴とする。

【0012】

請求項1に記載の発明によれば、シールがセパレータの表裏で種類の異なるゴム材から形成されることから、それぞれの部位の環境に適したゴム材を使用でき、シール付き燃料電池用セパレータのシール部分の耐久性をあげることができる。

【0013】

請求項 2 に記載の発明は、請求項 1 に記載の発明の構成において、前記シールは、前記セパレータの空気通路側の面には酸素に耐久性のある種類のゴム材、前記セパレータの冷媒通路側の面には冷媒に耐久性のあるゴム材からなることを特徴とする。

#### 【0014】

請求項 3 に記載の発明は、請求項 1 に記載の発明の構成において、前記シールは、前記セパレータの水素ガス通路側の面には水素に耐久性のある種類のゴム材、前記セパレータの冷媒通路側の面には冷媒に耐久性のあるゴム材からなることを特徴とする。

#### 【0015】

請求項 2 または請求項 3 に記載の発明によれば、請求項 1 に記載の発明による作用に加え、セパレータの表裏それぞれの面には、それぞれの環境に適した酸素または水素に耐久性のあるゴム材、あるいは、冷媒に耐久性のあるゴム材からシールが形成されていることから、シール付き燃料電池用セパレータのシール部分の耐久性を全体として上げることができる。

#### 【0016】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態を、適宜図面を参照しながら詳細に説明する。

参照する図面において、図 1 は、積層された単セルの断面図である。

#### 【0017】

単セル 1 は、高分子電解質膜、電極触媒層、ガス拡散層（図示せず）を有する膜電極接合体 MEA を挟むように、燃料電池用セパレータ（シール付き燃料電池用セパレータ）10、10 を配置して構成される。

燃料電池用セパレータ 10 は、板状のセパレータ SA（または SH）と、セパレータ SA（または SH）の両端部の表裏に配置される一対のシール 12A、12C（または 12B、12C）とを一体成形して形成されるものである。

#### 【0018】

セパレータ SA（または、SH）は、単セル 1 を積層化して形成される燃料電池スタックにおいて、単セル 1 を複数枚重ね合わせて所要の電圧を得る各セル間

の繋ぎ（積層化機能）を持たせるために用いられる。

#### 【0019】

なお、セパレータSA、SHの材料には、たとえば、銅板、ステンレス銅板、アルミニウム板、メッキ処理銅板や防食用の表面処理をした金属薄板、または、合成黒鉛や黒鉛と樹脂とを混合したカーボン系の材料が好適に用いられるが、特に限定されるものではない。また、セパレータSA、SHの厚みは特に限定されるものではないが、本実施形態では0.05～0.3mm程度を想定する。

#### 【0020】

シール12Aは、セパレータSAと膜電極接合体MEAの間に形成される空気通路20に面するセパレータSAの面に形成され、シール12Cは冷媒通路22に面するセパレータSAの面に形成される。また、シール12Bは、水素ガス通路21に面するセパレータSHの水素ガス通路21の面に形成され、冷媒通路22に面するセパレータSHの面にはシール12Cが形成される。

#### 【0021】

なお、シール12A、12B、12CはセパレータSA、SHのそれぞれ形成される面の両端部において、それぞれ一部凸状になるように形成される。たとえば、セパレータ11の面を基準にして薄く覆う部分の厚みは0.05～0.4mm程度とし、凸状部分は1mm程度の高さとする。

#### 【0022】

シール12A、12B、12Cは、ゴム組成物から形成される。

本発明に用いられる組成物とは、加硫することによりシール材を組成するための組成物であり、一般に、ゴム成分、加硫化剤、加硫促進剤から主として構成され、所望に応じて従来公知の各種添加剤を添加できる。

#### 【0023】

本発明において用いられるゴム成分（ゴム材）とは、限定されるものではないが、たとえば、ニトリルゴム、シリコーンゴム、フッ素ゴム、アクリルゴム、スチレンブタジエンゴム、エチレンプロピレンゴム、四フッ化エチレン樹脂、アクリロニトリルブタジエンゴム、イソプレングム、ブタジエンゴム、ブチルゴム、クロロピレンゴム、エチレンプロピレンジエン（EPDM）ゴム、ウレタンゴム

、クロロスルホン化ポリエチレンゴム、塩素化ポリエチレンゴム、エピクロルヒドリンゴムの各種合成ゴムおよび天然ゴム（NBR）、またはこれらのブレンドが挙げられる。

これらのゴム成分は、形成されるシールの性質に応じて適宜選択することができる。

具体的には、シール 12 A には、酸素に耐久性のあるゴム成分として、天然ゴム、イソpreneゴム、ブタジエンゴム、スチレンゴム、ブチルゴム、エチレンプロピレンゴム、クロロピレンゴム、ハイパロン、ニトリルゴム、アクリルゴム、ウレタンゴム、多硫化ゴム、シリコーンゴム、フッ素ゴム、クロロスルホン化ポリエチレンゴム、エピクロルヒドリンゴム等が好適に用いられる。

また、シール 12 B には、水素に耐久性のあるゴム成分として、天然ゴム、イソpreneゴム、ブタジエンゴム、スチレンゴム、ブチルゴム、エチレンプロピレンゴム、クロロピレンゴム、ハイパロン、アクリルゴム、ウレタンゴム、フッ素ゴム等が好適に用いられる。

シール 12 C には、冷媒（水等）に耐久性のあるゴム成分として、ニトリルゴム、シリコーンゴム、フッ素ゴム、スチレンブタジエンゴム、エチレンプロピレンゴム、四フッ化エチレン樹脂等が好適に用いられる。

なお、電気絶縁性を持たせたい場合には、天然ゴム、イソpreneゴム、スチレンブタジエンゴム、ブチルゴム、ブタジエンゴム、エチレンプロピレンゴム、ハイパロン、多硫化ゴム、シリコーンゴム、クロロスルホン化ポリエチレンゴム、フッ素ゴム等を適宜選択できる。

#### 【0024】

本発明の組成物における加硫剤および加硫促進剤およびその添加量は、当該技術分野に公知の化合物から適宜選択される。例えば、加硫剤としては、硫黄、パーオキサイド、ポリアミン、チウラムージサルファイド等が挙げられ、加硫促進剤としては、グアニジン類、チオウレア類、チアゾール類、ジチオカルバミン酸塩類等が挙げられる。

さらに、その他の成分として、着色剤、たとえば、酸化チタン、弁柄、群青、カーボンブラック等を添加して、シール 12 A, 12 B, 12 C を色分けしても

よい。

このような成分から構成される組成物は、一般には加温することにより、粘性のある流体となる。

#### 【0025】

前記したセパレータSAとシール12A, 12Cを一体成形して、燃料電池用セパレータ10とする製造方法について、以下、説明する。

図2は、燃料電池用セパレータの製造工程について説明する図であって、(a)は、ゴム組成物を仮成形して仮成形シールとする図、(b)は、仮成形シール間にセパレータをインサートする図、(c)は、シールおよびセパレータを保持して仮成形シールを本加硫する図、(d)は、成形品の図である。

なお、ここで、「仮成形シール」とは、本発明に係る方法により加硫して所望の性能を有するシール材を意味する。また、「仮成形」とは、ゴム組成物からなるシールを所定の形状を保持できる状態であり、なおかつ、さらに硬化可能な状態で硬化（半硬化）させることができる状態をいう。

#### 【0026】

まず、第1の工程として、ゴム組成物12a, 12a'を仮成形する（仮成形工程。図2(a)参照）。ここで、ゴム組成物12aは、最終的にシール12Aになり、ゴム組成物12a'は、最終的にシール12Cになるものとする。

仮成形工程は、ゴム組成物12a, 12a'を所定の形状を有する仮成形シール12b, 12b'に成形することを目的とする工程であり、完全に加硫化させて最終シール12A, 12Cを形成するものではない。

仮成形シール12b, 12b'は、セパレータSAの表裏に形成するものであるため、表面に形成されるものと裏面に形成されるものを別個に成形するようにする。

選択されたゴム組成物12a, 12a'における成分に応じて、ゴム組成物12a, 12a'がそれぞれ所定の形状となる程度の条件で、従来公知のゴム成分の成形法、たとえば、トランスファ成形により、ゴム組成物12a, 12a'を仮成形シール12b, 12b'に成形する。

たとえば、ゴム組成物12aにおいて、選択されたゴム成分がエチレンプロピ

レンゴム (EPDM) であり、これをトランスファ成形により成形する場合、60～170℃程度の温度で2分間程度成形を行う。このようにして、ゴム組成物 12a は所定のゴム形状を有する仮成形シール 12b となる。

#### 【0027】

第2の工程として、仮成形シール 12b, 12b' にセパレータ SA をインサートする (挟持工程。図2 (b) 参照)。

挟持工程では、仮成形工程において成形された表面用 (または裏面用) 仮成形シール 12b 上にセパレータ SA を載置して、裏面用 (または表面用) 仮成形シール 12b' を上から覆うようにセットする。

なお、次工程において、セパレータ上に形成するシールの位置ズレを防止する目的で、インサートする際に、仮成形シール 12b, 12b' またはセパレータ SA、あるいは両者に従来公知の接着剤を塗布してもよい。

#### 【0028】

第3の工程として、仮成形シール 12b, 12b' を本加硫して所望の弾性を有するシール 12A, 12C に形成する (本加硫工程。図2 (c) 参照)。

本加硫工程では、加硫型内で仮成形シール 12b, 12b' およびセパレータ SA を保持しながら仮成形シール 12b, 12b' の本加硫を行う。

たとえば、ゴム成分が、前記同様のエチレンプロピレンゴム (EPDM) であり、これをトランスファ成形により成形する場合、セパレータ SA がインサートされた仮成形シール 12b を加圧化 (たとえば、7.8～14.7MPa)、150～180℃程度の温度で加硫が終わるまで加硫する。このように本加硫することによって、所望の性質を有するシール 12A をセパレータ SA に形成することができる。

#### 【0029】

第4の工程として、本加硫工程で得られた成形品たる燃料電池用セパレータ 10 (図2 (d) 参照) をさらに二次加硫してもよい (二次加硫工程)。

二次加硫工程は、必ずしも必要な工程ではなく、所望に応じて適宜行うことができる。

二次加硫工程を行う場合、前記した本加硫工程では所望の性質を有するシール

12A, 12Cとなるまで加硫を行わず、セパレータSAの表裏にシールが形成される程度（仮成形シール12b, 12b' とシール12A, 12Cの間くらい）に加硫を行う。次いで、二次加硫工程において、所望とする最終形状を有するシール12A, 12CをセパレータSAの表裏に形成する（たとえば、図2（d）に示す例においては、オーブン中、150～180℃程度の温度で加硫が終わるまで加硫を行う。）。

なお、セパレータSHも同様の製造方法により製造できる。

#### 【0030】

以上によれば、本実施形態において、次のような効果が得られる。

セパレータSA, SHの表裏それぞれの面には、それぞれの環境に適した酸素または水素に耐久性のあるゴム材、あるいは、冷媒に耐久性のあるゴム材からシール12A, 12B, 12Cが形成されていることから、シール付き燃料電池用セパレータの耐久性を全体として上げることができる。

また、シール12A, 12B, 12Cをそれぞれ色分けすることにより、組付け時の位置決めを容易にすることができる。

さらに、部分的に異なる特性を有するシールを所望の場所に形成することができるため、圧縮荷重特性、絶縁性、耐環境性等、様々な特性を持たせることが可能になる。

#### 【0031】

さらに、本実施形態による製造方法によれば、仮成形されて必要な形状を持った仮成形シール12b, 12b' の間にセパレータSAをインサートして、セパレータSAとシール12A, 12Cを一体化成形することができるので、セパレータSAを大幅に変形させることなしにゴム組成物12a, 12a' 等からシール12A, 12C（または、12B）を効率良く、かつ、精度良く製造することが可能となる。

なお、二次加硫工程を含むことにより、仮成形工程における時間を短縮でき、時間的に加硫型を有効活用でき、大量生産しやすくなる点で利点がある。

また、二次加硫工程を含むことにより、加硫を完全に行い、不純物を揮発させることができる。

## 【 0 0 3 2 】

従来技術では成形が困難であったゴム組成物 1 2 a 等を複雑な形状に成形することも可能であるため、シール 1 2 A 等を、クッション材、シール材としての機能を果たせるような最適な形状に成形することも可能である。

## 【 0 0 3 3 】

以上、本発明の実施の形態を説明したが、本発明はこれらの実施の形態に限定されるものではなく、種々の変更が可能である。たとえば、本実施形態では、セパレータ S A（または、S H）の両端部においてシール 1 2 A、1 2 C（またはシール 1 2 B、1 2 C）を形成する構成としたが、本発明はこれに限定されるものではなく、一方の端部においてのみ形成するようにしてもよい。

## 【 0 0 3 4 】

また、本実施形態においては、仮成形工程等を設けつつシール 1 2 A 等とセパレータ S A を一体成形しているが、本発明はこれに限定されるものではない。たとえば、予め異なる種類のゴム材で成形されたシールを、その環境に合わせてセパレータの表裏に接着処理を行うものでもよいし、もしくは、インジェクション法・コンプレッション法・トランスファ法等を用いて成形したシールをセパレータの表裏に一体成形してもよい。また、セパレータの表裏いずれか一面においてはシールを一体成形し、他方の面においては他の種類のゴム材からなるシールを接着処理するものであってもよい。

さらに、たとえば、本発明を電子製品の部品等、一般のシール付き金属板の製造にも適用することができる。なお、シールまたはセパレータの形状、厚み、高さ等は適宜変更可能であることはいうまでもない。

## 【 0 0 3 5 】

## 【発明の効果】

請求項 1 に記載の発明によれば、シールがセパレータの表裏で種類の異なるゴム材から形成されることから、それぞれの部位の環境に適したゴム材を使用でき、シール付き燃料電池用セパレータのシール部分の耐久性をあげることができる。

請求項 2 または請求項 3 に記載の発明によれば、セパレータの表裏それぞれの

面には、それぞれの環境に適した酸素または水素に耐久性のあるゴム材、あるいは、冷媒に耐久性のあるゴム材からシールが形成されていることから、シール付き燃料電池用セパレータのシール部分の耐久性を全体として上げることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

図 1 は、積層された単セルの断面図である。

【図 2】

シール付き燃料電池用セパレータの製造工程について説明する図であって、（a）は、ゴム組成物を仮成形して仮成形シールとする図、（b）は、仮成形シール間にセパレータをインサートする図、（c）は、シールおよびセパレータを保持して仮成形シールを本加硫する図、（d）は、成形品の図である。

【図 3】

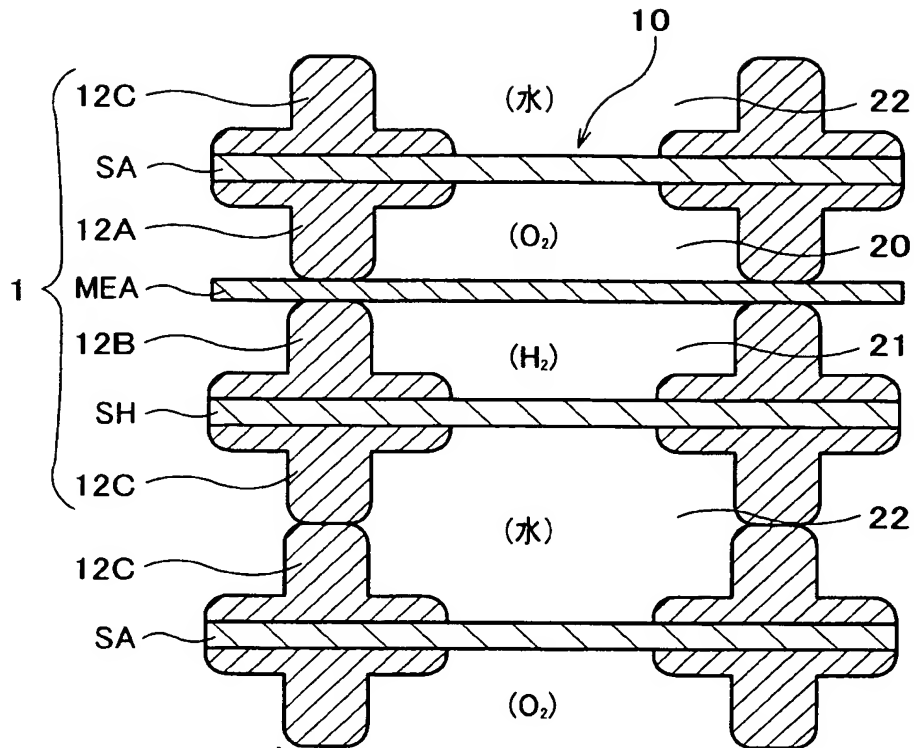
（a）は、従来の燃料電池スタックの外観を示す斜視図であり、（b）は、（a）の単セルの構成を拡大した図である。

【符号の説明】

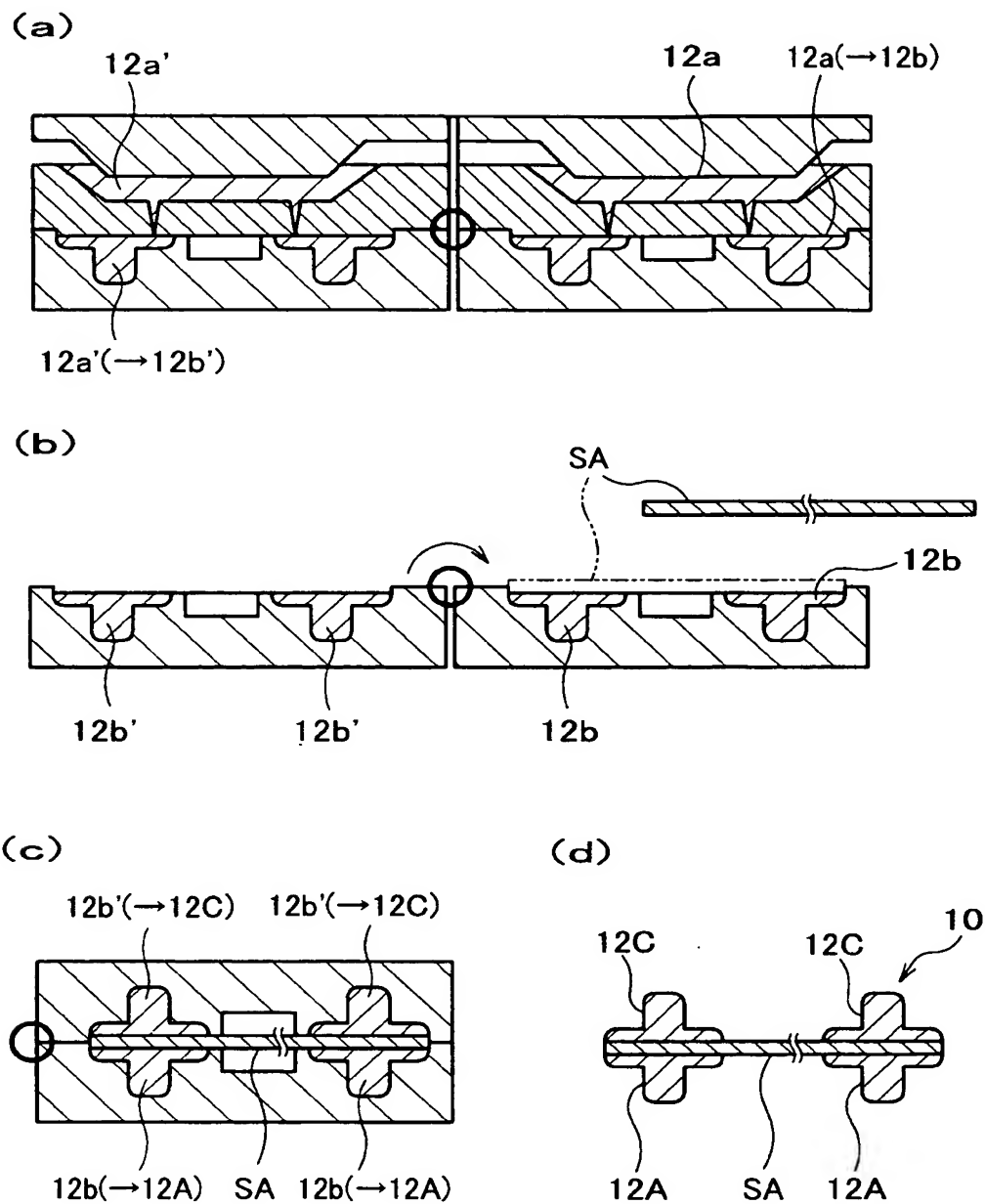
|                     |                             |
|---------------------|-----------------------------|
| 1                   | 単セル                         |
| 1 0                 | 燃料電池用セパレータ（シール付き燃料電池用セパレータ） |
| S A, S H            | セパレータ                       |
| 1 2 A, 1 2 B, 1 2 C | シール                         |
| 1 2 a, 1 2 a'       | ゴム組成物                       |
| 1 2 b, 1 2 b'       | 仮成形シール                      |
| 2 0                 | 空気通路                        |
| 2 1                 | 水素ガス通路                      |
| 2 2                 | 冷媒通路                        |

【書類名】 図面

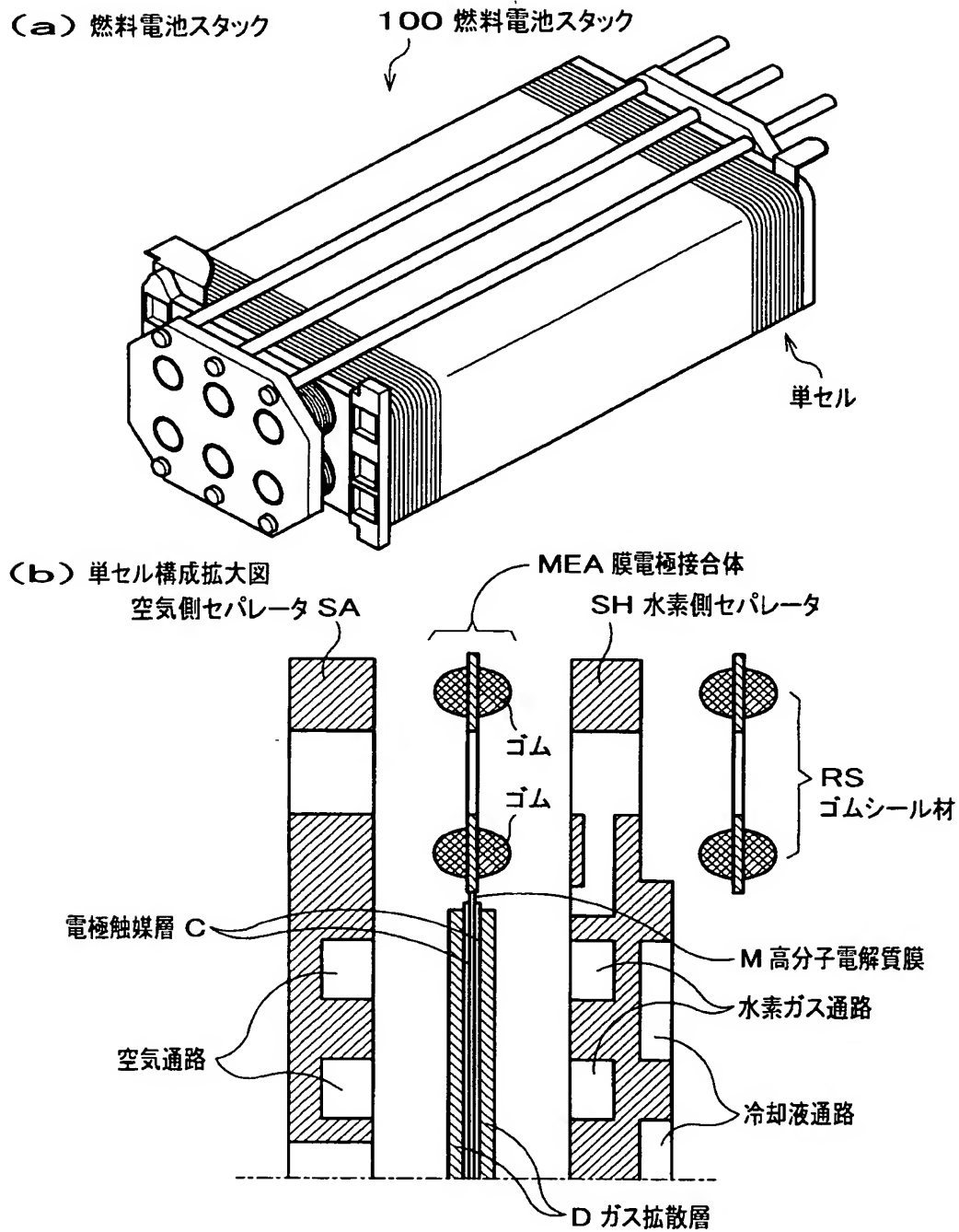
【図 1】



【図 2】



【図 3】



**【書類名】 要約書****【要約】**

**【課題】** それぞれの部位における環境に適するようなシールを有するシール付き燃料電池用セパレータを提供することを課題とする。

**【解決手段】** セパレータ S A（または、S H）の少なくとも一方の端部の表裏にシール 1 2 A，1 2 C（または、1 2 B，1 2 C）を有するシール付き燃料電池用セパレータ（燃料電池用セパレータ 1 0）であって、前記シール 1 2 A，1 2 C（または 1 2 B，1 2 C）は、前記セパレータ S A（または、S H）の表裏で種類の異なるゴム材からなるように構成する。このように、それぞれの部位の環境に適したゴム材を使用することで、シール付き燃料電池用セパレータ（燃料電池用セパレータ 1 0）のシール部分の耐久性をあげることができる。

**【選択図】** 図 1

特願 2 0 0 2 - 3 4 3 7 8 6

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 5 3 2 6 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 9 月 6 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区南青山二丁目 1 番 1 号

氏 名

本田技研工業株式会社